

⑯ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑯ Offenlegungsschrift
⑯ DE 198 40 517 A 1

⑯ Int. Cl. 7
H 01 M 8/02
H 01 M 8/22

⑯ Anmelder:

Manhattan Sciences, Inc., New York, N.Y., US

⑯ Vertreter:

Lederer, Keller & Riederer, 84028 Landshut

⑯ Erfinder:

Rosenmayer, Volker, 83416 Saaldorf-Surheim, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

⑯ Gasdiffusionsstruktur senkrecht zur Membran von Polymer-Elektrolyt-Membran-Brennstoffzellen
⑯ Mit allen bisher bekannten Gasdiffusionsstrukturen kann ein Ausgleich der Wasserbilanz der Brennstoffzelle, ein Schutz vor Austrocknung und eine Verhinderung von Wasserablagerungen bei gleichzeitiger gleichmäßiger Verteilung der Reaktionsgase nicht gewährleistet werden. Mit der erfindungsgemäßen Gasdiffusionsstruktur wird durch Schichtaufbau ein Gradient in der Gasdurchlässigkeit senkrecht zur Membran erzeugt. Dadurch wird bei geeigneter Betriebstemperatur und geeigneter Stoichiometrie der Reaktanden gewährleistet, daß die Befeuchtung der Membran durch das gebildete Produktwasser an jeder Stelle konstant und optimal ist. Somit kann auf zusätzliche Befeuchtungssysteme verzichtet werden, was Kosten und Gewicht spart.

— AVAILABLE COPY

— AVAILABLE COPY

DE 198 40 517 A 1

DE 198 40 517 A 1

Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Gasdiffusionsstruktur senkrecht zur Membran von Polymerelektrolyt-Membran (PEM)-Brennstoffzellen, die mit den Reaktionsgasen Wasserstoff und Sauerstoff oder Luft betrieben wird, und ein Verfahren zu ihrer Herstellung.

Eine PEM-Brennstoffzelle besteht von außen nach innen angeordnet aus zwei Stromableiterplatten, zwei Gasdiffusionsschichten, zwei den Katalysator enthaltenden Elektroden und einer Ionenaustauschermembran, die zwischen den Elektroden liegt und mit diesen die Membran-Elektroden-Einheit bildet (im folgenden MEA - Membrane Electrode Assembly). Die Stromableiterplatten enthalten typischerweise zur MEA parallel verlaufende Einrichtungen zur Zuführung und Verteilung der Reaktanden über die gesamte Zellfläche. Da die elektrische Spannung einer einzelnen Zelle für praktische Anwendungen viel zu niedrig ist, müssen eine Mehrzahl solcher Zellen in Reihe geschaltet werden. Bei dem sich daraus ergebenden Brennstoffzellenstapel bzw. -stack werden die aufeinandertreffenden Stromableiterplatten durch sog. Bipolarplatten ersetzt, deren Funktion in der Stromdurchleitung durch den Stack und der Trennung der Reaktionsgase liegt.

Durch Zuführung von Wasserstoff als typisches Reaktionsgas an die Anodenseite der Brennstoffzelle, welche sich in einem gegen die Umgebung abgedichteten Gasraum befindet, werden in der Anodenkatalysatorschicht Kationen erzeugt, die durch die Ionenaustauschermembran diffundieren. Gleichzeitig werden die ebenfalls erzeugten Elektronen durch einen äußeren Stromkreis mit Lastwiderstand von der Anode zur Kathode geführt. Das zugeführte Oxidationsmittel Sauerstoff, wobei bevorzugt die Sauerstoffkonzentration in der Luft genügt, wird nun in der Kathode durch Aufnahme der Wasserstoffionen und Elektronen reduziert. Als Reaktionsprodukt entsteht Wasser. Die Reaktionsenthalpie wird in Form von elektrischer Energie und Abwärme frei.

Ein wesentliches Problem dabei ist der Wasserhaushalt der Brennstoffzelle. Die Membran arbeitet nur dann unter optimalen Bedingungen, d. h. sie leitet die Wasserstoffionen optimal, wenn sie ausreichend Feuchtigkeit enthält. Sinkt ihr Feuchtigkeitsgehalt zu stark ab, steigt der Innenwiderstand der Zelle aufgrund des erhöhten Membranwiderstandes beträchtlich an, wodurch die Leistung sinkt. Zum optimalen Zellbetrieb bedarf es daher bei gegebener Temperatur an jeder Stelle der Membran einer Luftfeuchtigkeit von nahezu 100 Prozent. Strömt das Kathodengas Luft durch die Verteilerkanäle der Stromableiterplatten und diffundiert durch die Gasdiffusionsschicht, hat es beim Eintritt in den Gasraum einen niedrigen Partialdruck an. Wasserdampf, beim Austritt einen hohen, da Sauerstoff an der Kathode zu Wasser reagiert. Der durch die Wasserstoffpartialdruckdifferenzen zwischen Membranoberfläche und Verteilerkanal hervorgerufene Diffusionsstrom trocknet die Membran am Einlaß des Kathodengases aus, am Auslaß entstehen dagegen möglicherweise Wasserablagerungen in der Diffusionsschicht. Bei gegebener Betriebstemperatur bedarf es demnach zum Ausgleich der Wasserbilanz der Membran einer über die Membranoberfläche möglichst konstanten Zusammensetzung des Kathodengases und auch des Anodengases.

Dieses Problem wird herkömmlich nur teilweise durch externe Befeuchtungssysteme, teils kombiniert mit dem Kühlungssystem, gelöst, die unter zumindest intervallweiser Messung der Membranfeuchte die Wasserbilanz der Zelle ausgleichen. Nachteilig an diesen Befeuchtungssystemen ist die zusätzliche Belastung des Brennstoffzellensystems mit Energieverbrauch, und Gewicht, was vor allem für die Anwendung in kleinen, portablen Systemen nicht wün-

schenwert ist und mit Kosten, welche die Weltbewerbsfähigkeit der Brennstoffzelle mit herkömmlichen Energieversorgungssystemen schwächt. Des Weiteren bleibt noch immer obiges Problem der gleichmäßigen Gasverteilung an der Oberfläche der Zellmembran. Ziel ist es eine Brennstoffzelle ohne Befeuchtung der Reaktionsgase zu betreiben.

Eine Lösung der Problematik einer gleichmäßigen Verteilung der Reaktionsgase zeigt US-PS 5,641,586. Zwischen die Elektrodenkatalysatorschicht und die Stromableiterplatte werden zwei Schichten angeordnet; an die MEA angrenzend eine microporöse, hydrophobe Gasdiffusionsschicht und angrenzend an die Stromableiterplatte ein macroporöses, hydrophiles Flow Field. Das Flow Field besitzt zwei, ineinandergreifende Kanalstrukturen einerseits zur Verteilung der Reaktionsgase an den Gasdiffusionsschichten, andererseits zum Abtransport der Reaktionsprodukte. Zwar können so die Reaktanden gleichmäßig über die Oberfläche der Membran verteilt werden, auch wird eine Wasserablagerung durch die Hydrophobierung vermieden, allerdings besteht nach wie vor die Gefahr der Austrocknung, da die Gasdiffusionsschicht einen Austritt des Reaktionsproduktes auch bei Unterversorgung der Membran mit Feuchtigkeit nicht verhindert.

Eine Möglichkeit, den Wasserhaushalt einer Brennstoffzelle auf konstantem, optimalen Niveau zu halten, zeigt DE-OS 14 96 172, worin eine Wasserstoffdiffusionselektrode aus einer Palladium/Gold-Legierung verwendet wird, die wasserstoffdurchlässig ist, aber den Durchtritt von Flüssigkeiten verhindert. Allerdings eignet sich diese nicht für die Anwendung an der Kathode, die vorwiegend das Problem des Ausgleichs der Wasserbilanz aufweist, da diese Elektrode für Sauerstoff undurchlässig ist.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, die herkömmliche Gasdiffusionsschicht für PEM-Brennstoffzellen durch eine Gasdiffusionsstruktur, deren Diffusionseigenschaft so bemessen ist, daß die Wasserbilanz an der MEA immer ausgeglichen ist, zu ersetzen.

Weiterhin ist es Aufgabe der Erfindung, ein einfaches, kostengünstiges Verfahren zur Herstellung dieser Gasdiffusionsstruktur aufzuzeigen.

Diese Aufgaben werden erfindungsgemäß gelöst durch eine Gasdiffusionsstruktur, welche senkrecht zur Membran einen Gradient in der Gasdurchlässigkeit gemäß Anspruch 1 aufweist sowie ein Verfahren zur Herstellung der Gasdiffusionsstruktur gemäß Anspruch 11.

Die Zeichnung zeigt eine erfindungsgemäße Gasdiffusionsstruktur in ihrer bevorzugten Ausführungsform gemäß den Beispielen.

Die Gasdiffusionsstruktur (3 und 4) besteht im allgemeinen aus porösen, elektrisch leitfähigen Materialien, welche zur Erreichung eines Gradienten in der Gasdurchlässigkeit in ihrem Porenvolumen angepaßt werden muß. Dies kann schichtweise oder kontinuierlich erfolgen. Eine nahezu kontinuierliche Änderung könnte erreicht werden, wenn sehr viele, sehr dünne Schichten mit jeweils etwas unterschiedlichen Diffusionseigenschaften aneinandergefügt werden, mindestens und im folgenden auch bevorzugt bedarf es jedoch zweier Schichten (3), (4) mit unterschiedlicher Gasdurchlässigkeit.

Die äußere Schicht (3), d. h. dieser Teil der Gasdiffusionsstruktur, der an die Stromableiterplatte (1) mit enthaltener Kanalstruktur (2) grenzt, besitzt bevorzugt ein relativ kleines Porenvolumen und damit einen hohen Diffusionswiderstand. Hingegen der innere Teil der Gasdiffusionsstruktur (4), d. h. der Teil, der mit der den Katalysator enthaltenden Elektrode (5) in Berührung ist, weist ein relativ hohes Porenvolumen auf. Die Reaktionsgase können sich daher auch auf Distanzen, die etwa in der Größenordnung der

Stegs der Stromableiterplatte (1) liegen (0,5–5 mm), durch Diffusion ausreichend gut innerhalb der Schicht (4) verteilen. Des Weiteren ist die äußere Schicht der orthogonalen Gasdiffusionsstruktur bevorzugt stärker hydrophob als die innere Schicht.

Diese zweischichtige Gasdiffusionsstruktur kann jedoch auch durch weitere Schichten mit jeweils unterschiedlichen Funktionen ergänzt werden. So kann es durchaus positiv sein, an die innere Schicht noch eine weitere Schicht zwischen Katalysator und Schicht (4) hinzuzufügen. Die Aufgabe dieser Schicht ist die oberflächliche Füllung und Glättung der meist größen Poren der Schicht (4) womit ein besserer Kontakt zwischen Gasdiffusionsstruktur und Elektrode hergestellt werden kann. Ein Verfahren zu ihrer Herstellung ist in Beispiel 3 beschrieben.

Weiterhin kann zwischen Schicht (3) und den Stegen der Stromableiterplatte eine weitere Schicht eingefügt werden. Ihre Aufgabe ist es den elektrischen Übergangswiderstand zur Kanalstruktur möglichst gering zu halten. Dazu könnte sie plastisch oder elastisch verformbar sein, so daß die Maßtoleranzen der Stromableiterplatten oder bei einer Anordnung in einem Brennstoffzellensteinstack die der Bipolarplatten ausgeglichen werden und eine Stromabnahme von den Gasdiffusionsstruktur gleichmäßig erfolgen kann.

Im folgenden soll nun die Funktionsweise der bevorzugt aus zwei Schichten (3 und 4) bestehenden erfindungsgemäßen Gasdiffusionsstruktur dargelegt werden. Die einstellbaren Betriebsparameter einer Brennstoffzelle sind die Luftzahl bzw. die Wasserstoffstoichometrie, der Betriebsdruck, der Wasserdampfgehalt der Reaktionsgase am Zelleintritt und die Betriebstemperatur. Letztere sollte so hoch als möglich gewählt werden, um ein kompaktes Kühlssystem mit geringem Kühlmitteldurchsatz zu ermöglichen. Das einfachste denkbare Kühlssystem besteht nur aus einem Ventilator, der eine für die Kühlung ausreichende Menge an Luft durch den Kathodenraum der Zelle oder des Stacks fördert. Der einstellbare Betriebsdruck sollte so gering als möglich gewählt werden, idealerweise sollte die Brennstoffzelle unter Umgebungsdruck betrieben werden. So können Energieverluste durch Kompressoren vermieden werden, wodurch auch eine Reduktion des Gewichts und der Kosten erfolgt.

Bei Betrieb unter diesen oder ähnlichen Bedingungen liegt der Schwerpunkt der Problematik einer ausgeglichenen Wasserbilanz nun vorwiegend nicht in der Wasserabladung in den Poren der Gasdiffusionsstruktur, sondern in der Gefahr einer Austrocknung der Membran. Um diesem Vorfürzugehen bedarf es, wie bereits geschildert, vor allem kathodenseitig einer näherungsweise konstanten Gaszusammensetzung über der gesamten Oberfläche der Membran und einer näherungsweise konstanten Gaszusammensetzung in der Kanalstruktur der Stromableiterplatte. Dies wird erreicht durch Wahl einer relativ großen Luftzahl (z. B. 8–70) durch die Kanäle (2) der Stromableiterplatte (1). Die Veränderung der Gaszusammensetzung durch Entnahme von Sauerstoff und Abgabe von Wasserdampf durch die Zelle sind dann vernachlässigbar. Der Diffusionswiderstand der Schicht (3) der erfindungsgemäßen Gasdiffusionsstruktur muß nun so beschaffen sein, daß der bei einer gewünschten Betriebstemperatur auftretende Gradient im Wasserdampfpartialdruck zwischen der wohlfbefeuchteten Membran und dem Gas im Kathodenraum einen Wasserdampfdiffusionsstrom verursacht, der gerade das gebildete Produktwasser abführt. Die wesentlichen Sauerstoff- und Wasserdampfgradienten treten somit nicht wie üblich parallel sondern senkrecht zur Oberfläche der Membran (6) auf. Die Betriebsbedingungen sind damit über die gesamte Membranoberfläche konstant. Die Schicht (4) hat die Aufgabe, die Gase im Bereich der Stege, wo der Diffusionsstrom unterbrochen ist,

gleichmäßig zu verteilen.

Wird eine relativ geringe Luftzahl gewünscht, bei der sich Änderungen in der Zusammensetzung des Kathodengases auf dem Weg durch die Zelle bemerkbar machen, so muß der Diffusionswiderstand der Schicht (3) diesen Verhältnissen angeglichen werden. Schicht (3) muß im Bereich des Gaseintritts mit höherem Diffusionswiderstand ausgeführt werden als im Bereich des Gasausgangs. Ebenso kann auf diese Art und Weise Leistungsminderung durch Unterschiede in der Betriebstemperatur innerhalb einer Zelle durch Anpassung des Diffusionswiderstands vermieden werden.

Die erfindungsgemäße Gasdiffusionsstruktur kann nicht nur wie hier exemplarisch beschrieben an der Kathode vorteilhaft eingesetzt werden, sondern auch an der Anode, insbesondere bei Betrieb der Zelle mit unbefeuchtetem Wasserstoff.

Die Herstellung dieser orthogonalen Gasdiffusionsstruktur mit einem Gradienten in der Gasdurchlässigkeit wird im folgenden beispielhaft beschrieben.

Beispiel 1

Der Gradient in der Gasdurchlässigkeit senkrecht zur Membran (6) wird durch Heißpressen einer Folie aus einem thermoplastischen Kunststoff (3) auf ein bezüglich der Diffusionseigenschaften homogenes Kohlefaserpapier (4) erreicht. Das thermoplastische Material (3) verteilt sich durch das Heißpressen in den Poren nahe einer Oberfläche des Kohlefaserpapiers (4) und verstopft diese teilweise. Die elektrische Leitfähigkeit senkrecht zur Schicht geht dadurch erstaunlicherweise nicht verloren, da die Kohlefasern die Folie durchdringen und der elektrische Strom somit wieder bis zur Oberfläche gelangt.

Das Kohlefaserpapier (4) besitzt anfangs bevorzugt ein Porenvolumen von mehr als 50% und besonders bevorzugt mehr als 70%. Es kann vor der Weiterverarbeitung mit Polytetrafluorethylen (PTFE) (5–40 Massen-%) nach dem in Beispiel 2 geschilderten Verfahren imprägniert werden. Die Dicke des Kohlefaserpapiers beträgt bevorzugt 0,1–1,5 mm und besonders bevorzugt 0,2–0,4 mm.

Die thermoplastischen Folien (3) bestehen aus Gründen der Hydrophobizität bevorzugt aus fluorierten Kunststoffen wie z. B. die Produkte THV und FEP der Firma Dyneon. Es können aber auch konventionelle Thermoplaste wie z. B. Polypropylen eingesetzt werden. Die Dicke der Folie beträgt bevorzugt 0,01 bis 0,2 mm. Über die Dicke der Folie und die Pressbedingungen kann der Diffusionswiderstand je nach Anwendungsfällen in weiten Grenzen eingestellt werden.

Die Temperatur beim Heißpressen wird bevorzugt in einem Bereich knapp unter bis knapp über dem Schmelzbereich des verwendeten Thermoplasts gewählt. Die Pressdrücke betragen bevorzugt zwischen 10 und 100 bar, besonders bevorzugt zwischen 30 und 80 bar. Die Fasern des Kohlefaserpapiers sollten nach Möglichkeit durch das Pressen nicht brechen.

Die andere Oberfläche des Kohlefaserpapiers kann mit einer Elektrode aus katalysatorhaltigem Material (5) beschichtet werden oder direkt auf eine bereits katalysierte Membran gelegt oder gepresst werden. Im letzteren Fall ist es jedoch von Vorteil eine die Oberflächenrauhigkeit des Kohlefaserpapiers ausgleichende Glättungsschicht wie in Beispiel 3 beschrieben zu verwenden.

Beispiel 2

Die mit Kunststoff teilweise verschlossenen Poren nach Beispiel 1 können auch durch Fräsen eines Kohlefaserpa-

piers mit suspendierten Kunststoffen, bevorzugt PTFE oder THV, hergestellt werden. Da in einem einzigen Kohlefaserpapier durch Tränken nur äußerst kompliziert ein Gradient senkrecht zur Papierfläche erzeugt werden kann, müssen zwei Kohlefaserpapiere verwendet werden, von denen das eine relativ viel Kunststoff enthält (3) und den Diffusionswiderstand bildet und das andere relativ viele offene Poren (4) enthält. Letzteres kann dann mit einer katalysatorhaltigen Elektrodenschicht oder mit einer die Rauhigkeiten des Kohlepapiers ausgleichenden Schicht, wie in Beispiel 3 dargestellt, versehen und entsprechend auf die nicht katalysierte oder katalysierte Membran gelegt oder gepresst werden. Für beide Kohlefaserpapiere gelten die Spezifikationen aus Beispiel 1.

Speziell für dieses Beispiel werden zwei Kohlefaserpapiere der Firma Toray (Japan) mit den Dicken 0.17 mm für das erste (3) und 0.35 mm für das zweite Kohlefaserpapier (4) verwendet. Das erste Papier wird durch Tränken in einer 60%igen wässrigen PTFE Dispersion und anschließendem Trocknen bei erhöhter Temperatur teilweise mit Kunststoff gefüllt. Ein einziger Verfahrensschritt bestehend aus Tränken und Trocknen reicht aber im allgemeinen nicht aus, um den gewünschten Diffusionswiderstand zu erreichen. Die Wiederholung des Verfahrensschrittes bringt jedoch auch kaum zusätzliches Material in das Kohlefaserpapier ein, da der bereits eingelagerte hydrophobe Kunststoff ein erneutes Eindringen der Dispersion in die Poren größtenteils verhindert. Höhere Füllgrade können nur durch aufeinanderfolgende Vakuum- und Druckbehandlung während des Imprägnierens erreicht werden. Nach Imprägnieren des Kohlefaserpapiers werden die verbliebenen Netzmittel aus der Dispersion thermisch zerstört. Typischerweise werden dabei Temperaturen zwischen 300 und 400°C kurzzeitig angewandt.

Die fertige Schicht ist extrem hydrophob. Sie enthält für den Anwendungsfall einer kathodenseitigen Diffusionsstruktur einer bei Umgebungsdruck und 70°C Zelltemperatur mit Luftkühlung des Kathodenraums betriebenen PEM-Brennstoffzelle 45–75% Kunststoff. Die Leitfähigkeit der Schicht wird dadurch nur unwesentlich beeinflußt, da innerhalb des Kohlefaserpapiers die leitfähigen Verbindungen zwischen den Kohlefasern nicht gelöst werden. Das zweite evtl. leicht hydrophobisierte Kohlefaserpapier wird mit dem ersten verpresst oder beim Zusammenbau der Zelle nur belegt.

Beispiel 3

Ein sehr gut elektrisch leitfähiges Schichtsystem, das einen geeigneten Gradienten im Diffusionswiderstand aufweist, kann auch durch Auftragen einer Mischung aus einem elektrisch leitfähigem Pulver und einem Binder auf ein Substrat mit geringen Diffusionswiderstand, z. B. ein Kohlefaserpapier erfolgen.

Speziell in diesem Beispiel wird ein hydrophobiertes Kohlefaserpapier mit 68% Porenvolumen und einer Dicke von 0.35 mm verwendet. Allgemein können Kohlefaserpapiere mit den Spezifikationen aus Beispiel 1 verwendet werden. Auf dieses Substrat wird eine Dispersion aus Graphitpulver, THV (Fa. Dyneon) oder PTFE (z. B. Hostaflon TP 5032) in geeigneten wässrigen Dispersionsflüssigkeiten in ein oder mehreren Sprühgängen mit Zwischenetrocknung aufgesprüht. Als Dispersionsflüssigkeiten dienen wässrige Tensidlösungen oder Mischungen aus Wasser und Alkoholen. Als elektrisch leitfähiges Pulver eignet sich bevorzugt Kohlenstoffpulver und besonders bevorzugt kugelförmige Kohlenstoffpartikel wie z. B. Mesocarbon Microbeads der Firma Osaka Gas, Japan.

Bevorzugt erfolgt das Sprühen auf einem Vakuumtisch, damit überschüssige Dispersionsflüssigkeit sofort abgesaugt wird. Nach dem letzten Trockenvorgang werden die Kunststoffpartikel bei erhöhter Temperatur gesintert und die Netzmittel zerstört. Der Anteil an Kunststoffbinder beträgt bevorzugt 5–50% von der Trockenmasse. Die flächenspezifische Masse der Schicht liegt bevorzugt zwischen 30 und 300 g/m² und besonders bevorzugt zwischen 60 und 120 g/m². Nach dem Sintern wird das Substrat und die aufgebrachte Schicht bei bevorzugt 5 bis 100 bar und besonders bevorzugt bei 30 bis 80 bar und erhöhter Temperatur verpresst.

Zum Ausgleich der Rauhigkeiten des Kohlefaserpapiers auf der Membran bzw. Katalysator zugewandten Seite ist es sinnvoll eine sehr dünne Schicht aus einer Dispersion aus porösem Ruß (z. B. Vulcan XC 72 von Cabot) und polymerem Binder (z. B. PTFE) durch Sprühen evtl. auf dem Vakuumtisch aufzutragen, zu trocknen und anschließend zu sintern. Der Kunststoffanteil liegt wiederum bevorzugt zwischen 5 und 50%. Diese Schicht kann ebenfalls mit den oben angegebenen Drücken verpresst werden.

Bezugszeichenliste

- (1) Stromableiterplatte
- (2) Kanalstruktur zum Verteilen der Reaktionsgase
- (3) äußerer Teil der orthogonalen Gasdiffusionsstruktur
- (4) innerer Teil der orthogonalen Gasdiffusionsstruktur
- (5) Katalysatoren enthaltende Elektrode
- (6) Polymerelektrolyt-Membran

Patentansprüche

1. Poröse, elektrisch leitfähige Gasdiffusionsstruktur für Polymerelektrolyt-Membran-Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß sie senkrecht zur Membran eine Struktur enthält, die mindestens in einem Teilbereich einen Gradienten in der Gasdurchlässigkeit aufweist.
2. Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie aus wenigstens zwei Teilstrukturen besteht.
3. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die beiden Teilstrukturen eine unterschiedliche Gasdurchlässigkeit aufweisen.
4. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Teilstruktur, die sich näher an den Stromableiterplatten befindet, eine geringere Gasdurchlässigkeit aufweist als die Teilstruktur, die näher an der Membran liegt.
5. Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Porenvolumendichte der Teilstruktur mit geringer Gasdurchlässigkeit kleiner ist als die Porenvolumendichte der Teilstruktur mit hoher Gasdurchlässigkeit.
6. Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens eine Teilstruktur hydrophob ist.
7. Verfahren zur Herstellung einer porösen, elektrisch leitfähigen Gasdiffusionsstruktur für Polymerelektrolyt-Membran-Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß senkrecht zur Membran eine Struktur hergestellt wird, die mindestens in einem Teilbereich einen Gradienten in der Gasdurchlässigkeit aufweist.
8. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß sie aus wenigstens zwei Teilstrukturen hergestellt wird.

9. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Teilstrukturen eine unterschiedliche Gasdurchlässigkeit aufweisen. 5

10. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß in der Teilstruktur, die sich näher an den Stromableiterplatten befindet, eine geringere Gasdurchlässigkeit erzeugt wird als in der Teilstruktur, die näher an der Membran liegt. 10

11. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß in der Teilstruktur mit geringer Gasdurchlässigkeit eine kleinere Porenvolumendichte erzeugt wird als in der Teilstruktur mit hoher Gasdurchlässigkeit. 15

12. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens eine Teilstruktur hydrophobiert wird. 20

13. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß wenigstens ein Kohlefaserpapier verwendet wird. 25

14. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß zur Erreichung einer geringen Gasdurchlässigkeit eines Teils des Kohlefaserpapiers die Poren nahe einer Oberfläche teilweise verschlossen werden. 30

15. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 13 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß zum teilweise Verschließen der Poren ein Thermoplast verwendet wird. 35

16. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 13 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß eine Folie unter Druck und erhöhte Temperatur auf eine Oberfläche des Kohlefaserpapiers aufgebracht wird. 40

17. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß zum teilweise Verschließen der Poren eine Suspension aus Kunststoffpartikeln verwendet wird. 45

18. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß die Suspension durch Tränken und Trocknen in das Kohlefaserpapier eingebracht wird. 50

19. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 7 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß zur Erreichung einer geringen Gasdurchlässigkeit an einer Oberfläche des Kohlefaserpapiers eine weitere Schicht aus elektrisch leitfähigen Partikeln und Binderpartikeln aufgebracht wird. 55

20. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß die Schicht durch Sprühen einer Suspension aus Binderpartikeln und elektrisch leitfähigen Partikeln und anschließendem Trocknen und evtl. Sintern hergestellt wird. 60

21. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 19 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß als Binder ein fluorierter Kunststoff verwendet wird. 65

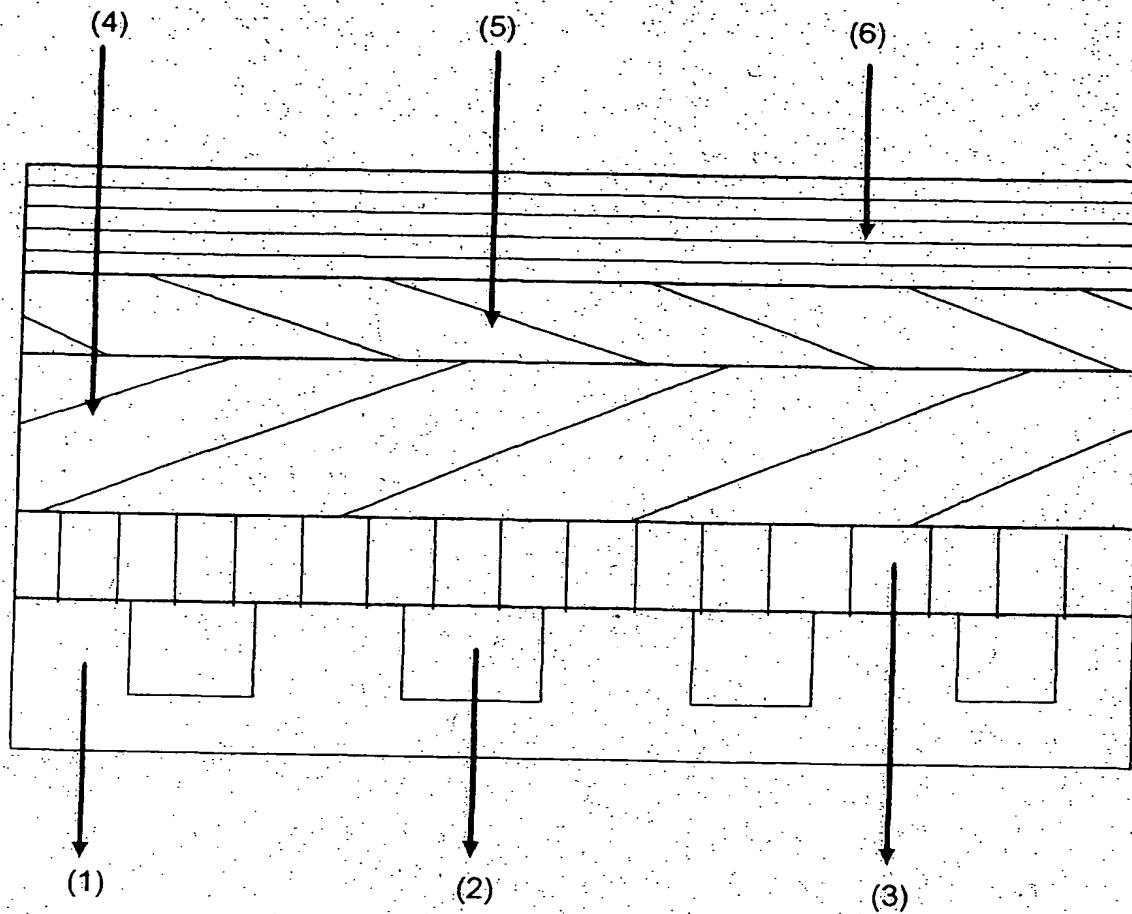
22. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionsstruktur nach einem der Ansprüche 19 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß die elektrisch leitfähigen Partikel aus Kohlenstoff bestehen. 70

23. Verwendung der porösen, elektrisch leitfähigen

Gasdiffusionsstruktur als Anode und/oder Kathode in
Polymerelektrolyt-Membran-Brennstoffzellen.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

ST AVAILABLE COPY



BEST AVAILABLE COPY